

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19)世界知的所有権機関
国際事務局



(43)国際公開日
2002年10月17日 (17.10.2002)

PCT

(10)国際公開番号
WO 02/081880 A1

(51)国際特許分類⁷: F01N 3/28, B01D 53/92, B32B 3/12 // B01D 39/20, 46/00

(21)国際出願番号: PCT/JP02/03243

(22)国際出願日: 2002年4月1日 (01.04.2002)

(25)国際出願の言語: 日本語

(26)国際公開の言語: 日本語

(30)優先権データ:
特願2001-105134 2001年4月3日 (03.04.2001) JP

(71)出願人(米国を除く全ての指定国について): 日本碍子株式会社 (NGK INSULATORS,LTD.) [JP/JP]; 〒467-8530 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号 Aichi (JP).

(72)発明者; および

(75)発明者/出願人(米国についてのみ): 土方俊彦 (HIJIKATA,Toshihiko) [JP/JP]; 〒467-8530 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号 日本碍子株式会社内 Aichi (JP).

(74)代理人: 渡邊一平 (WATANABE,Kazuhira); 〒111-0053 東京都台東区浅草橋3丁目20番18号 第8菊星タワービル3階 Tokyo (JP).

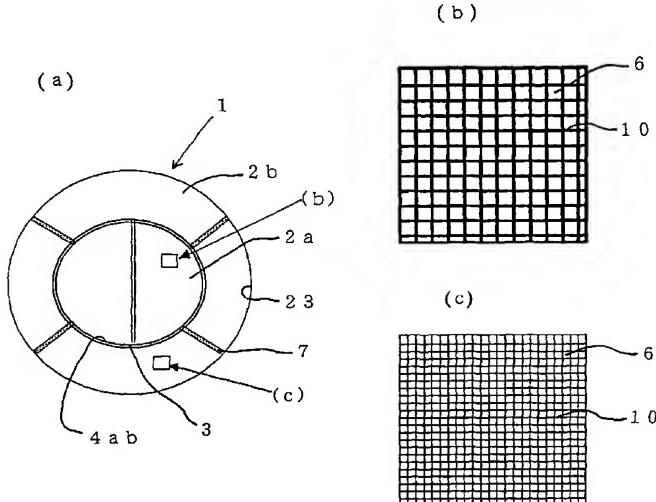
(81)指定国(国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84)指定国(広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許

[続葉有]

(54)Title: HONEYCOMB STRUCTURE AND ITS ASSEMBLY

(54)発明の名称: ハニカム構造体及びそのアッセンブリ



(57)Abstract: A honeycomb structure (1) in which a plurality of honeycomb segments (2a, 2b) of honeycomb construction having a number of axially-through flow holes (6) separated by partition walls (10) are integrated. At least one of the honeycomb segments (2a) not constituting the outermost peripheral surface (23) of the honeycomb structure (1) is greater in average wall thickness and not greater in cell density than at least one of the honeycomb segments (2b) constituting the outermost peripheral surface (23). A honeycomb structure assembly in which a compressive elasticity material (B) is placed in a compressed state on the outermost peripheral surface (23) of the honeycomb structure (1) to thereby compressively hold the honeycomb structure (1) within a metal vessel. The honeycomb structure and the assembly are low in pressure loss and superior in durability against thermal stress cracking while preventing the lowering of reaction rate, purification efficiency, regeneration efficiency, etc., during use.

[続葉有]

WO 02/081880 A1



(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

添付公開書類:
— 國際調査報告書

(57) 要約:

隔壁（10）により仕切られた軸方向に貫通する多数の流通孔（6）を有するハニカム構造からなる複数のハニカムセグメント（2a、2b）が一体化されてなるハニカム構造体（1）である。ハニカム構造体（1）の最外周面（23）を構成しないハニカムセグメント（2a）の少なくとも1が、最外周面23を構成するハニカムセグメント（2b）の少なくとも1つよりも平均壁厚が厚く、且つセル密度が小さいか又は等しい。ハニカム構造体（1）を、ハニカム構造体（1）の最外周面（23）に圧縮弾性材料Bを圧縮状態で配することにより金属容器内に圧縮把持してなるハニカム構造体アッセンブリである。このハニカム構造体及びアッセンブリは、使用時における反応率、浄化効率、再生効率等の低下を抑えつつ、圧力損失が小さく熱応力破損に対する耐久性に優れる。

明細書

ハニカム構造体及びそのアッセンブリ

技術分野

本発明は、内燃機関、ボイラー、化学反応機器及び燃料電池用改質器等の触媒作用を利用する触媒用担体又は排ガス中の微粒子捕集フィルター等に用いられるハニカム構造体及びそのアッセンブリに関し、特に使用時の熱応力による破損に対する耐久性に優れ、且つ圧力損失の小さいハニカム構造体及びそのアッセンブリに関する。

背景技術

内燃機関、ボイラー、化学反応機器及び燃料電池用改質器等の触媒作用を利用する触媒用担体、又は排ガス中の微粒子、特にディーゼル微粒子の捕集フィルター等にハニカム構造体が用いられている。

この様な目的で使用されるハニカム構造体は、排気ガスの急激な温度変化や局所的な発熱によってハニカム構造内の温度分布が不均一となり、ハニカム構造体にクラックを生ずる等の問題があった。特にディーゼルエンジンの排気中の粒子状物質を捕集するフィルターとして用いられる場合には、溜まったカーボン微粒子を燃焼させて除去し再生することが必要であり、この際に局所的な高温化が避けられないため、大きな熱応力が発生し易く、クラックが発生し易かった。

このため、ハニカム構造体を複数に分割したセグメントを接合材により接合する方法が提案された。例えば、米国特許第4335783号公報には、多数のハニカム体を不連続な接合材で接合するハニカム構造体の製造方法が開示されている。また、特公昭61-51240号公報には、セラミック材料よりなるハニカム構造のマトリックスセグメントを押し出し成形し、焼成後その外周部を加工して平滑にした後、その接合部に焼成後の鉱物組成がマトリックスセグメントと実質的に同じで、且つ熱膨脹率の差が800°Cにおいて0.1%以下となるセラミック接合材を塗布し、焼成する耐熱衝撃性回転蓄熱式が提案されている。また、1

986年のS A E論文860008には、コーデュライトのハニカムセグメントを同じくコーデュライトセメントで接合したセラミックハニカム構造体が開示されている。さらに特開平8-28246号公報には、ハニカムセラミック部材を少なくとも三次元的に交錯する無機纖維、無機バインダー、有機バインダー及び無機粒子からなる弾性質シール材で接着したセラミックハニカム構造体が開示されている。

しかしながら、排ガス規制の更なる強化やエンジンの高性能化等のため、エンジン燃焼条件の改善、触媒浄化性能の向上を狙いとして、排気ガス温度が年々上昇してきており、ハニカム担体に要求される耐熱衝撃性も厳しくなってきている。従って、上述のようなハニカム構造体であっても、使用時における流入ガス温の急激な変化、局所的な反応熱、燃焼熱等がより大きくなると、充分に熱応力を緩和できず、ハニカム構造体にクラックを生じ、極端な場合ハニカム構造体がばらけ、振動により構造体が粉々に破壊するなどの可能性が考えられる。

このような問題を解消する手段としては、ハニカム構造体の熱容量を大きくすることで温度変化を小さくし、反応速度、燃焼速度を遅らせ、最大温度を下げることで、ハニカム構造体に作用する熱応力を緩和する方法があるが、このような方法では、ハニカム構造体の反応率、浄化効率、再生効率が低下し、圧力損失が大きくなる欠点があり、自動車排ガス浄化用として用いられた場合、燃費、ドライバビリティの低下、補機類の大型化等の問題を起こす。また、特公昭54-110189号公報において、ハニカム担体の横断面中心方向へ隔壁厚さを規則的に薄くした構造が提案されており、さらに、特開昭54-150406号公報又は特開昭55-147154号公報において、ハニカム構造体の外周側部分のセル隔壁を内部のセル隔壁よりも厚くした構造が提案されている。しかし、この様なハニカム構造体は外部からの機械的応力に対する強度は強くなるが、内側のセル隔壁が薄いため、使用時における熱応力に対しては充分な耐久性があるとは言えない。

本発明はこのような従来の事情に鑑みてなされたものであり、その目的とするところは、使用時における反応率、浄化効率、再生効率等の低下抑えつつ、圧力損失が小さく且つ熱応力破損に対する耐久性に優れたハニカム構造体を提供する

ことにある。

発明の開示

本発明は上記課題を解決すべく研究を重ねた結果、中心部の温度上昇を抑制しつつ外周部を高温に保つことにより、反応率等の効率低下を抑制しつつ熱応力に対する耐久性を改良できることを見出したことに基づき、さらに、中心部におけるハニカム構造体の隔壁の厚さを厚くし且つセル密度を外周部のセル密度以下にすることによって圧力損失を小さくすることができ、且つ全体の熱容量をさほど大きくしなくとも中心部の温度上昇を抑制できることを見出したことに基づくものである。

即ち、第1の発明は、隔壁により仕切られた軸方向に貫通する多数の流通孔を有するハニカム構造からなる複数のハニカムセグメントが一体化されてなるハニカム構造体であって、前記ハニカム構造体の最外周面を構成しない前記ハニカムセグメントの少なくとも1が、前記最外周面を構成するハニカムセグメントの少なくとも1つよりも平均壁厚が厚く、且つセル密度が小さいか又は等しいことを特徴とするハニカム構造体を提供するものである。

第1の発明において、前記最外周面を構成しない少なくとも1つのハニカムセグメントのセル密度と、前記最外周面を構成する少なくとも1つのハニカムセグメントのセル密度との比が1：1～1：6であることが好ましく、最外周面を構成するハニカムセグメントの少なくとも1つにおける平均壁厚の、最外周面を構成しないハニカムセグメントの少なくとも1つにおける平均壁厚に対する比率が0.2～0.9であることが好ましい。また、最外周面を構成しないハニカムセグメントの少なくとも1つの体積がハニカム構造体の体積の9%～81%であることが好ましい。また、ハニカム構造体が自動車排ガス浄化用として用いられることが好ましく、ディーゼル微粒子捕集用フィルターとして用いられることがさらに好ましい。さらに、ハニカムセグメントが互いに隣接する面の間の一部又は全部に圧縮弾性材料A、好ましくはセラミック繊維製マット、さらに好ましくはアルミナ又はムライト組成を主成分とする非膨脹性マットを配することが好ましい。さらに、ハニカムセグメントの主成分が、炭化珪素、窒化珪素、コーニジエラ

イト、アルミナ、ムライト、ジルコニア、磷酸ジルコニウム、アルミニウムチタネート、チタニア及びこれらの組み合わせよりなる群から選ばれる少なくとも1種のセラミックス、Fe-Cr-Al系金属、ニッケル系金属又は金属SiとSiCとからなるものであることが好ましい。

第2の発明は、上記ハニカム構造体を、該ハニカム構造体の最外周面に圧縮弾性材料Bを圧縮状態で配することにより金属容器内に圧縮把持してなるハニカム構造体アッセンブリを提供するものである。

第2の発明において、前記圧縮弾性材料Bがセラミック繊維製マットであることが好ましく、バーミュキュライトを含む加熱膨張性マット又はアルミナ又はムライト組成を主成分とする非膨張性マットであることがさらに好ましい。また、ハニカム構造体アッセンブリが、押込み、巻き締め、クラムシェル、スウェージングでキャニングされていることが好ましい。さらに、ハニカムセグメントに触媒を担持させた後、金属容器に収納してなるハニカム構造体アッセンブリであることが好ましく、また、ハニカムセグメントを金属容器に収納した後に、該ハニカムセグメントに触媒を担持させてなるハニカム構造体アッセンブリであることも好ましい。

図面の簡単な説明

図1(a)は本発明の一実施形態を示すハニカム構造体の断面一模式図であり、図1(b)、図1(c)は図1(a)における各々内側セグメント及び外側セグメントの拡大図である。

図2は、本発明の別の実施形態を示すハニカム構造体の断面一模式図である。

図3は、本発明の一実施形態を示すハニカム構造体アッセンブリの断面一模式図である。

図4は、金属容器内へのハニカム構造体の押込み方法の一例を示す一部切り欠き説明図である。

図5は、金属容器内へハニカム構造体を収納するための巻き絞め方法の一例を示す斜視図である。

図6は、金属容器内へハニカム構造体を収納するためのクラムシェル方法の一

例を示す斜視図である。

図7は、金属容器内へハニカム構造体を収納するためのスウェービング方法の一例を示す流通孔方向に対する平行断面図である。

図8は、金属容器内へハニカム構造体を収納するためのスウェービング方法の一例を示す流通孔方向に対する平行断面図である。

図9は、ストート堆積圧力損失試験の結果を示すグラフである。

図10は、ストート燃焼再生試験の結果を示すグラフである。

発明を実施するための最良の形態

以下、図面に従って、本発明のハニカム構造体及びハニカム構造体アッセンブリの内容を詳細に説明するが、本発明は以下の実施形態に限定されるものではない。尚、以下において断面とは、特に断りのない限り流通孔方向に対する垂直の断面を意味する。

図1(a)は本発明に係るハニカム構造体の一実施形態を示すハニカム構造体の断面-模式図である。本発明のハニカム構造体1は図1(b)、(c)に示されるような隔壁10により仕切られた軸方向に貫通する多数の流通孔6を有するハニカムセグメント2a及び2bが一体化されることにより構成される。

本発明の重要な特徴は、図1(b)、(c)に示されるように、最外周面23を構成しないハニカムセグメント2aが、最外周面を構成するハニカムセグメント2bよりも平均壁厚が厚く且つセル密度が同等以下であることである。本発明において、平均壁厚とはハニカムセグメント2の最外周壁を含めない隔壁10の平均の厚さを意味する。また、セル密度とは単位断面積当たりの流通孔の数(セル数/ $c\ m^2$)を意味する。本発明のハニカム構造体は、この様な構成にしたことにより、中心部のセル密度がより小さいため、隔壁を厚くしても圧力損失を低減することができ、且つ隔壁の厚い中心部の反応速度を低く抑えられるので、ハニカム構造体内最大温度は低くなり、隔壁の薄い外側セグメントの温度は高くなる結果、十分な反応率、浄化効率、再生効率を保持しながら、ハニカム構造体全体の温度分布を小さくできる。従って、本発明のハニカム構造体1は、ハニカム構造体全体の圧力損失を低減することができ、且つ反応率、浄化効率、再生効率を

大きくしつつ、ハニカム構造体全体の温度分布を小さくできるので、低圧損、高耐久性、高効率性を示すものとなる。

本発明において、「ハニカム構造体の最外周面を構成しないハニカムセグメント」(以後内側セグメントと称す)とは、例えば図1(a)において、ハニカム構造体1の最外周面23を構成しない2つのハニカムセグメント2aを意味し、「ハニカム構造体の最外周面を構成するハニカムセグメント」(以後外側セグメントと称す)とは、ハニカム構造体1の最外周面23を構成する4つハニカムセグメント2bを意味する。従って、内側セグメントの少なくとも1つとは、例えば図1(a)～(c)において2つの内側セグメント2aのうちの1つ又は2つを意味し、外側セグメントの少なくとも1つとは、4つの外側セグメント2bのうちの1つ、2つ、3つ又は4つを意味する。例えば図1(a)～(c)に示される本発明は、2つの内側セグメント2aのうち少なくとも1つのセグメントが、4つの外側セグメント2bのうち少なくとも1つのセグメントよりも隔壁10の平均厚さが厚く且つセル密度が小さい構成となっている。本発明において、内側セグメント2aのセル密度は、外側セグメント2bのセル密度と等しくても良いが、上記のように内側セグメント2aのセル密度が外側セグメント2bのセル密度より小さいことが好ましい。また、2つの内側セグメント2aの両者が、4つの外側セグメント2bの何れよりも平均壁厚が厚く且つセル密度が小さいことがさらに好ましい。

図2は本発明の別の実施形態を示したものであるが、この場合には中心部4個の断面四角形状のハニカムセグメント2cが内側セグメントとなり、各々8個のハニカムセグメント2f、2e及4個のハニカムセグメント2dの合計20個が外側セグメントとなる。従って、内側セグメント2cの少なくとも1つのセグメントにおける平均壁厚が、外側セグメント2f、2d及び2eのうち少なくとも1つのセグメントにおける平均壁厚より厚く且つセル密度が同等以下の構成となっている。

平均壁厚が厚く且つセル密度が同等以下のハニカムセグメント2cは、ハニカム構造体1の中心部に近い方が好ましく、例えば図2において、ハニカム構造体1の断面上の中心に接する4つの内側セグメント2cの平均壁厚が合計20個の

外側セグメント 2 d、2 f 及び 2 e の何れか 1 つ、さらに好ましくは外側セグメント全体の平均壁厚よりも厚いことが好ましい。

セル密度がより小さい内側セグメントのセル密度と、セル密度がより大きい外側セグメントのセル密度との比は、好ましくは 1 : 1 ~ 1 : 6、さらに好ましくは 1 : 1 ~ 1 : 5、さらにより好ましくは 1 : 1. 1 ~ 1 : 5、最も好ましくは 1 : 1. 1 ~ 1 : 4 である。特に、ディーゼル微粒子用フィルターとして使用する場合、外側セグメントのセル密度が内側セグメントのセル密度よりも小さいと、フィルター面積が小さく十分低い圧力損失が得られなくなり、外側セグメントのセル密度が内側セグメントのセル密度よりも大きすぎると、目封止が困難となり、実質的に製造できない。

隔壁の薄い外側セグメントにおける平均壁厚の、隔壁の厚い内側セグメントの平均壁厚に対する比率は、好ましくは 0. 2 ~ 0. 9 であり、さらに好ましくは 0. 3 ~ 0. 9 であり、最も好ましくは 0. 5 ~ 0. 8 である。この比率が小さすぎると実質的に製造が困難となり、1 に近すぎると本発明の効果が得られない。

隔壁が厚く且つセル密度が小さい内側セグメントの断面積は、ハニカム構造体全体の断面積の好ましくは 9 %以上、さらに好ましくは 1.6 %以上、さらにより好ましくは 2.5 %以上である。本発明において断面積とは、図 1 (a) ~ (c)、図 2 に示されるような、流通孔 6 に対する垂直断面における流通孔部分を含む面積を意味する。この断面積が小さすぎると隔壁を厚くする効果が充分ではなくなる。さらに、隔壁の厚い内側セグメントの断面積がハニカム構造体全体の体積の 8.1 %以下であることが好ましく、さらに好ましくは 6.4 %以下、さらにより好ましくは 4.9 %以下である。この断面積が大きすぎると反応効率が低下し好ましくない。

本発明において、内側及び外側セグメントのセル密度は何れも 0. 9 ~ 3.10 セル / cm² (6 ~ 2000 セル / 平方インチ) の範囲にあることが好ましい。セル密度が 0. 9 セル / cm² 未満になると、幾何学的表面積が不足し、3.10 セル / cm² を超えると、圧力損失が大きくなりすぎる。また、ハニカムセグメント 2 の流通孔 6 の断面形状（セル形状）は、製作上の観点から、三角形、四角形及び六角形のうちのいずれかであることが好ましい。

本発明におけるハニカム構造体1はハニカムセグメント2が一体化されたものであるが、例えば接合材7を用いてハニカムセグメント2が互いに隣接する面4を接合することができる。また、圧縮弾性材料Aをハニカムセグメントの互いに隣接する面に配することも好ましい。さらに、図1(a)に示されるように、圧縮弾性材料A3、好ましくはセラミック繊維製マットを内側セグメント2aと外側セグメント2bが互いに隣接する面4a bに配することが好ましく、さらに、図2に示されるように、外側セグメント2e同士が互いに隣接する面4e eに圧縮弾性材料A3を配することも好ましい。この様に圧縮弾性材料Aを各面間に配することにより、熱応力が緩和され、ハニカム構造体の耐久性がさらに向上する。

本発明において、圧縮弾性材料Aは耐熱性とクッション性を備えることが好ましい。耐熱性及びクッション性を有する圧縮弾性材料Aとしては、バーミュキュライトを実質上含まない非膨脹性材料、又は少量のバーミュキュライトを含む低膨脹性材料であり、アルミナ、高アルミナ、ムライト、炭化珪素、窒化珪素、ジルコニア、チタニアからなる群より選ばれた少なくとも1種あるいはこれらの複合物からなるセラミック繊維を主成分とすることが好ましく、この中でもバーミュキュライトを実質上含まずアルミナ又はムライトを主成分とする非膨脅性材料がより好ましい。さらに、これらの繊維製マットであることが好ましく、セラミック繊維製マットがアルミナ又はムライト組成を主成分とする非膨脅性マットであることがさらに好ましい。これらのセラミック製マットは、被処理流体の漏れを防止する観点からシール性を有することがさらに好ましい。圧縮弾性材料Aの好適な具体例は、3M社製／1100HTや三菱化学社製／マフテック等である。

本発明において、ハニカムセグメント2は強度、耐熱性等の観点から、主成分が、炭化珪素、窒化珪素、コーチェライト、アルミナ、ムライト、ジルコニア、磷酸ジルコニウム、アルミニウムチタネート、チタニア及びこれらの組み合わせよりなる群から選ばれる少なくとも1種のセラミックス、Fe-Cr-Al系金属、ニッケル系金属又は金属SiとSiCとからなることが好ましい。本発明において、主成分とは成分の80質量%以上を占め、主結晶相となるものを意味する。接合材7も上記ハニカムセグメントに好適な材料の中から選ぶことができる。

圧縮弾性材料Aを配する際には、製作上の観点から、ハニカムセグメント2の

断面は、少なくとも一辺が、30mm以上であることが好ましく、さらに好ましくは50mm以上、最も好ましくは70mm以上である。

図3は図1(a)～(c)に示すハニカム構造体を金属容器11に保持したハニカム構造体アッセンブリ8の断面一模式図である。図3に示す本発明のハニカム構造体アッセンブリ8は、ハニカム構造体1の最外周面23に圧縮弾性材料B5を圧縮状態で配することによりハニカム構造体1を金属容器11に圧縮把持してなるものである。

本発明において圧縮弾性材料B5としては、前述の圧縮弾性材料Aと同様に耐熱性及びクッション性を有することが好ましく、さらにシール性を有することが好ましいが、非膨脹性材料であっても膨脹性材料であっても良い。好ましい圧縮弾性材料Bはアルミナ、高アルミナ、ムライト、炭化珪素、窒化珪素、ジルコニア、チタニアからなる群より選ばれた少なくとも1種あるいはそれらの複合物を主成分とするセラミック繊維等であるが、これらの繊維製マットであることがさらに好ましい。具体的には前述の3M社製／1100HTや三菱化学社製／マフテック等を用いることができるが、膨脹性マットである3M社製／インタラムマット等を用いることもできる。

本発明において、ハニカム構造体1を圧縮弾性材料Bとともに圧縮状態で金属容器11内に入れる方法は、図4に示すガイド17を用いた押込み方法、図5に示す金属板11cを巻き付けて引っ張ることで面圧を付与し、金属板11cの合わせ部を溶接して固定する巻き絞め方法、あるいは図6に示す2分割された金属容器11a、11bで負荷を与えるながら挟み込み、2つの金属容器11a、11bの合わせ面(つば)16a、16bの個所を溶接することで一体化容器とするクラムシェル方法が好適である。また、この他に、図7に示すような、金属塑性加工技術を応用した、金属容器11を外部からタップ(加圧型)12を介して圧縮圧力を加えて金属容器11の外径寸法を絞る方法(スウェージング方法)も好適である。さらには、図8に示すように、塑性加工を応用した方法で金属容器11を回転させながら加工治具18を用いて最外周面を塑性加工により絞り込む方法、いわゆる回転鍛造方法によることで金属容器の外径を絞り、面圧を付与する方法も可能である。

本発明のハニカム構造体又はハニカム構造体アッセンブリを触媒担体として、内燃機関、ボイラー、化学反応機器、燃料電池用改質器等に用いる場合、ハニカムセグメントに触媒能を有する金属を担持させるようにする。触媒能を有する代表的なものとしては Pt、Pd、Rh 等が挙げられ、これらのうちの少なくとも 1 種をハニカムセグメントに担持させることが好ましい。

一方、本発明のハニカム構造体又はハニカム構造体アッセンブリを、ディーゼルエンジン用パティキュレートフィルター (DPF) のような、排気ガス中に含まれる粒子状物質を捕集除去するためのフィルターに用いようとする場合、ハニカム構造体の流通孔を交互に封じ隔壁をフィルターとする構造を有するものが好ましい。

このような、ハニカムセグメントから構成されるハニカム構造体の一端面より粒子状物質を含んだ排気ガスを通すと、排気ガスは当該一端面側の流通孔が封じられていない流通孔よりハニカム構造体の内部に流入し、濾過能を有する多孔質の隔壁を通過し、他端面側の封じられていない孔より排出される。この隔壁を通過する際に粒子状物質が隔壁に捕捉される。端面を封じるための材料は上記ハニカムセグメント 2 に好適な材料の中から選ぶことができる。

なお、捕捉された粒子状物質が隔壁上に堆積してくると、圧損が急激に上昇し、エンジンに負荷がかかり、燃費、ドライバビリティが低下するので、定期的にヒーター等の加熱手段により、粒子状物質を燃焼除去し、フィルター機能を再生させるようとする。この燃焼再生時、燃焼を促進させるため、ハニカム構造体に前記のような触媒能を有する金属を担持させても良い。

本発明において、ハニカム構造体又はハニカム構造体アッセンブリに触媒を担持させる方法としては、触媒担持前に金属容器 11 内にセルハニカム構造体 1 を把持してから、ハニカム構造体 1 に触媒を担持させる方法が可能である。この方法によれば、触媒担持工程中に、ハニカム構造体 1 が欠けたり、破損したりする可能性を回避することができる。また、ハニカムセグメント 2 に触媒成分を担持した後に、ハニカム構造体 1 とし、これを金属容器 11 内に収納把持してなることが、本発明のハニカム構造体又はハニカム構造体アッセンブリを触媒コンバータとして用いる場合に好ましい。

以下、本発明を実施例に基づいてさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

尚、以下の実施例及び比較例で作製したハニカム構造体はセルを交互に目封じし、隔壁をフィルターとして利用するディーゼル微粒子捕集用フィルターである。

(実施例 1)

原料として、炭化珪素粉末を使用し、これにメチルセルロース及びヒドロキシプロポキシリルメチルセルロース、界面活性剤及び水を添加して、可塑性の坏土を作製した。この坏土を押出成形し、マイクロ波及び熱風で乾燥した。次いで、端面を交互に千鳥状になるようにハニカム構造体と同材質の目封止材で目封止し、次に、N₂雰囲気中で加熱脱脂した後、Ar雰囲気中で焼成して、外径がΦ144 mm、内径がΦ73 mmの1/4断面形状×長さ152 mmの外側セグメント2 b、及び外径がΦ72 mmの1/2の断面形状×長さ152 mmの内側セグメント2 aを得た。内側セグメント2 aの壁厚は0.38 mm、セル密度が31セル/cm²であり、外側セグメント2 bの壁厚は0.25 mm、セル密度が31セル/cm²である。これらのハニカムセグメントをコロイダルシリカとアルミナファイバーを水で混合した接合材により接合、乾燥することにより、直径144 mm×長さ152 mm、の円柱状ハニカム構造体1が組み立てられた。さらに、そのハニカム構造体1の外周にセラミック纖維製非膨脹マットを巻き付け、SUS409の金属容器11にテーパー治具により押込んでセグメント間、ハニカム構造体1と金属容器間を圧縮固定してハニカム構造体アッセンブリ8を得た。

(実施例 2)

実施例1と同様の操作を行い、内側セグメント2 aの壁厚が0.38 mm、セル密度が31セル/cm²であり、外側セグメント2 bの壁厚が0.25 mm、セル密度が47セル/cm²であるハニカム構造体1を得た。さらに、そのハニカム構造体1の外周にセラミック纖維製非膨脹マットを巻き付け、SUS409の金属容器11にテーパー治具により押込んでセグメント間、ハニカム構造体1と金属容器11間を圧縮固定してハニカム構造体アッセンブリ8を得た。

(実施例 3)

実施例 1 と同様の操作を行い、内側セグメント 2 a の壁厚が 0.43 mm、セル密度が 31 セル／c m²であり、外側セグメント 2 b の壁厚が 0.20 mm、セル密度が 47 セル／c m²であるハニカム構造体 1 を得た。さらに、そのハニカム構造体 1 の外周にセラミック繊維製非膨脹マットを巻き付け、SUS 409 の金属容器 1 1 にテーパー治具により押込んでセグメント間、ハニカム構造体 1 と金属容器 1 1 間を圧縮固定してハニカム構造体アッセンブリ 8 を得た。

(実施例 4)

実施例 1 と同様の操作を行い、内側セグメント 2 a の壁厚が 0.53 mm、セル密度が 16 セル／c m²であり、外側セグメント 2 b の壁厚が 0.20 mm、セル密度が 62 セル／c m²であるハニカム構造体 1 を得た。さらに、そのハニカム構造体 1 の外周にセラミック繊維製非膨脹マットを巻き付け、SUS 409 の金属容器 1 1 にテーパー治具により押込んでセグメント間、ハニカム構造体 1 と金属容器 1 1 間を圧縮固定してハニカム構造体アッセンブリ 8 を得た。

(比較例 1)

実施例 1 と同様の操作を行い、内側及び外側の全セグメントの壁厚が 0.38 mm、セル密度が 31 セル／c m²であるハニカム構造体 1 を得た。さらに、そのハニカム構造体 1 の外周にセラミック繊維製非膨脹マットを巻き付け、SUS 409 の金属容器にテーパー治具により押込んでセグメント間、ハニカム構造体 1 と金属容器 1 1 間を圧縮固定してハニカム構造体アッセンブリ 8 を得た。

(ストート体積圧力損失試験)

このようにして得た実施例 1～4 及び比較例 1 のハニカム構造フィルター（ハニカム構造体アッセンブリ）に、ディーゼルエンジンから排出される微粒子（以降ストートと称する）を含んだ、排ガス温度 200℃、排ガス流量 2.4 Nm³/m in. の排気ガスを通し、ハニカム構造フィルターに 4 g のストートが堆積した時の圧力損失を測定した。試験結果を図 9 に示す。比較例 1 のフィルターに 4 g のストートを堆積させた時の圧損は 9.0 KPa であった。これに比べ外側セグメントの壁厚を薄くした実施例 1 のフィルターは 6.7 KPa と比較例に比べ 26% 低かった。実施例 1 と同じ壁厚とし、外側セグメントのセル密度を大きくした実施例 2 では 6.2 KPa の圧損を示し、比較例に比べ 31% とさらに低圧損であ

った。さらに、ハニカム構造体に働く熱応力をより低減する目的で、内側セグメントの壁厚を厚く、熱容量を大きくした、圧損に不利な実施例3及び実施例4のフィルターでも、外側セグメントの壁厚をさらに薄く、セル密度をさらに大きくすることで、実施例3のフィルターで5.9KPaの圧損、実施例4のフィルターで6.0KPaの圧損とそれぞれ比較例に比べ34%、33%と十分低い圧損を可能とした。

(燃焼再生試験)

実施例3、4及び比較例1のハニカム構造フィルターにストートを各々30g捕集し、入口ガス温700°C、酸素濃度10%、排ガス流量0.7Nm³/min.の排気ガスによりフィルターに堆積したストートを燃焼、ハニカム構造体内15箇所の温度を測定した。燃焼試験後、ハニカム構造フィルターの重量を測定し、ストートの再生効率を求めた。さらに、燃焼再生によるハニカム構造体の損傷を目視と実体顕微鏡により観察、破損の有無を確認した。その結果を図10に示す。

比較例1のフィルターのハニカム構造体内最高温度は1050°Cまで上昇し、ハニカム構造体は破損した。これに対し、本発明による実施例3及び4のフィルターは、最大温度が各々830°C及び780°Cと低く抑えられ、ストート再生効率も90%以上を示した。

産業上の利用可能性

以上説明してきたように本発明によるハニカム構造体及びそのアッセンブリは、内側セグメントの壁厚を外側セグメントの壁厚より厚くし、外側セグメントの壁厚を内側セグメントの壁厚より薄く、且つセル密度を大きくすることにより、隔壁の有効気孔率を大きく、フィルター面積を大きくできるので、ディーゼル微粒子堆積時の圧力損失が低く、且つハニカム構造体内に発生する最大温度が低く抑えられ、ストート再生効率を高く保つものとなった。従って、本発明によるハニカム構造体及びそのアッセンブリは、圧力損失が低く、且つ優れた耐久性及び高い効率を示した。

請 求 の 範 囲

1. 隔壁により仕切られた軸方向に貫通する多数の流通孔を有するハニカム構造からなる複数のハニカムセグメントが一体化されてなるハニカム構造体であつて、前記ハニカム構造体の最外周面を構成しない前記ハニカムセグメントの少なくとも1が、前記最外周面を構成するハニカムセグメントの少なくとも1つよりも平均壁厚が厚く、且つセル密度が小さいか又は等しいことを特徴とするハニカム構造体。
2. 前記最外周面を構成しない少なくとも1つのハニカムセグメントのセル密度と前記最外周面を構成する少なくとも1つのハニカムセグメントのセル密度との比が1：1～1：6であることを特徴とする請求項1に記載のハニカム構造体。
3. ハニカム構造体の最外周面を構成するハニカムセグメントの少なくとも1つにおける平均壁厚の、ハニカム構造体の最外周面を構成しないハニカムセグメントの少なくとも1つにおける平均壁厚に対する比率が0.2～0.9であることを特徴とする請求項1又は2に記載のハニカム構造体。
4. ハニカム構造体の最外周面を構成しない少なくとも1つのハニカムセグメントの断面積が、前記ハニカム構造体の断面積の9%～81%であることを特徴とする請求項1乃至3の何れか1項に記載のハニカム構造体。
5. ハニカム構造体が自動車排ガス浄化用として用いられるることを特徴とする請求項1乃至4の何れか1項に記載のハニカム構造体。
6. ハニカム構造体がディーゼル微粒子捕集用フィルターとして用いられるることを特徴とする請求項1乃至5の何れか1項に記載のハニカム構造体。
7. ハニカムセグメントが互いに隣接する面の間の一部又は全部に圧縮弾性材料Aを配してなることを特徴とする請求項1乃至6の何れか1項に記載のハニカム構造体。
8. 前記圧縮弾性材料Aがセラミック繊維製マットであることを特徴とする請求項7に記載のハニカム構造体。
9. 前記セラミック繊維製マットがアルミナ又はムライト組成を主成分とする非膨脹性マットであることを特徴とする請求項8に記載のハニカム構造体。

10. ハニカムセグメントの主成分が、炭化珪素、窒化珪素、コーチェライト、アルミナ、ムライト、ジルコニア、磷酸ジルコニウム、アルミニウムチタネート、チタニア及びこれらの組み合わせよりなる群から選ばれる少なくとも1種のセラミックス、Fe-Cr-Al系金属、ニッケル系金属又は金属SiとSiCとからなることを特徴とする請求項1乃至9のいずれか1項に記載のハニカム構造体。

11. 隔壁により仕切られた軸方向に貫通する多数の流通孔を有するハニカム構造からなる複数のハニカムセグメントが一体化されてなるハニカム構造体であって、前記ハニカム構造体の最外周面を構成しない前記ハニカムセグメントの少なくとも1が、前記最外周面を構成するハニカムセグメントの少なくとも1つよりも平均壁厚が厚く、且つセル密度が小さいか又は等しい請求項1乃至10の何れか1項に記載のハニカム構造体を、前記ハニカム構造体の最外周面に圧縮弾性材料Bを圧縮状態で配することにより金属容器内に圧縮把持してなるハニカム構造体アッセンブリ。

12. 前記圧縮弾性材料Bがセラミック繊維製マットであることを特徴とする請求項11に記載のハニカム構造体アッセンブリ。

13. 前記セラミック繊維製マットがバーミュキュライトを含む加熱膨脹性マット又は前記非膨脹性マットであることを特徴とする請求項12に記載のハニカム構造体アッセンブリ。

14. ハニカム構造体アッセンブリが、押込み、巻き締め、クラムシェル、スウェーディングでキャニングされていることを特徴とする請求項11乃至13の何れか1項に記載のハニカム構造体アッセンブリ。

15. ハニカムセグメントに触媒を担持させた後、金属容器に収納してなる請求項11乃至14の何れか1項に記載のハニカム構造体アッセンブリ。

16. ハニカムセグメントを金属容器に収納した後に、該ハニカムセグメントに触媒を担持させてなる請求項11乃至14の何れか1項に記載のハニカム構造体アッセンブリ。

1/7

図1(a)

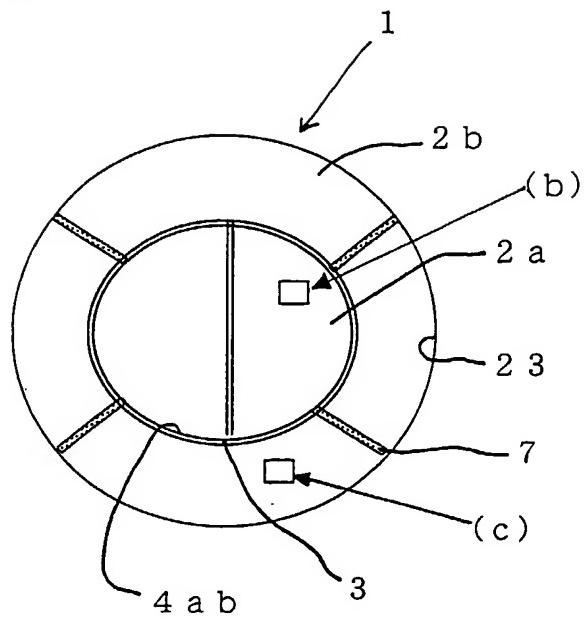


図1(b)

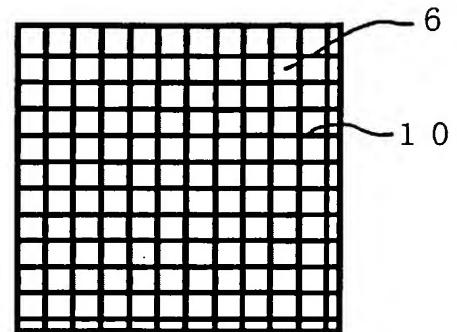


図1(c)

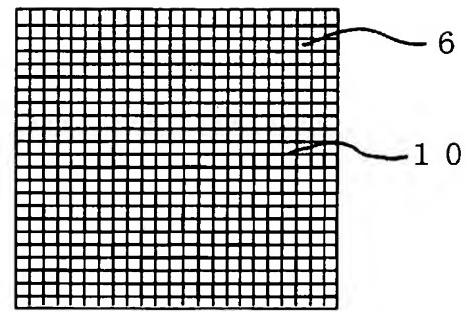
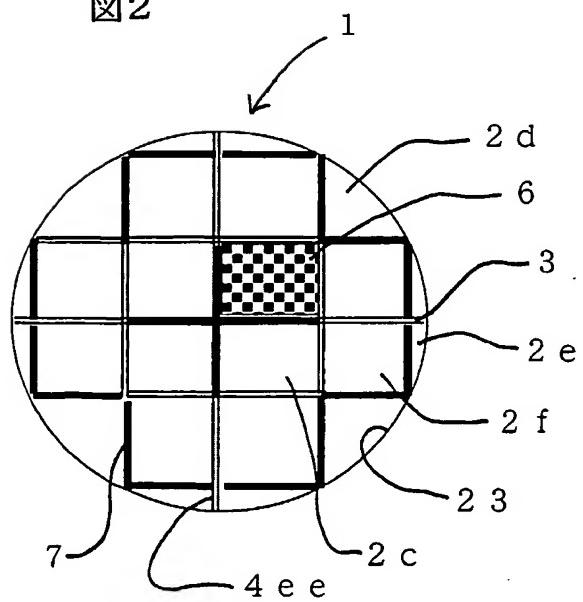


図2



2/7

図3

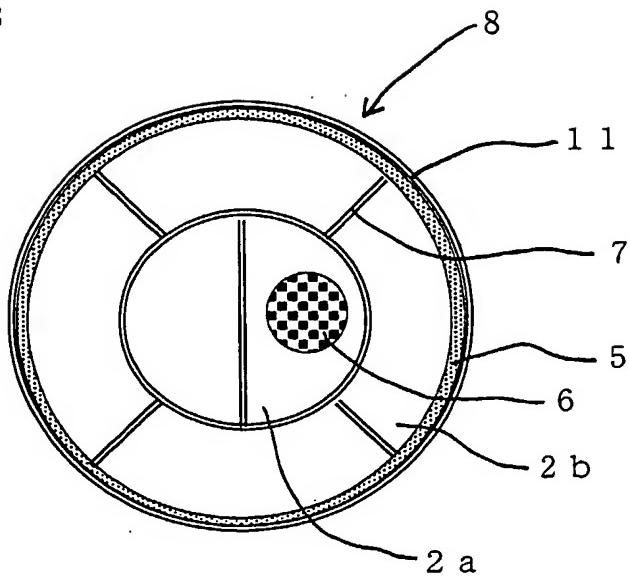
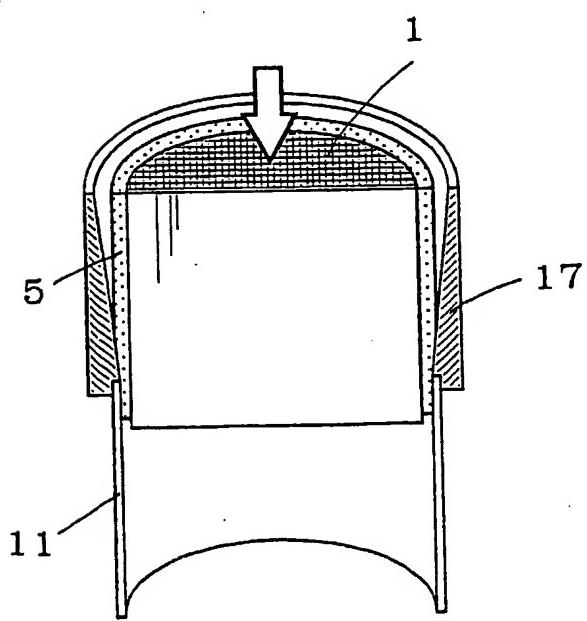


図4



3/7

図5

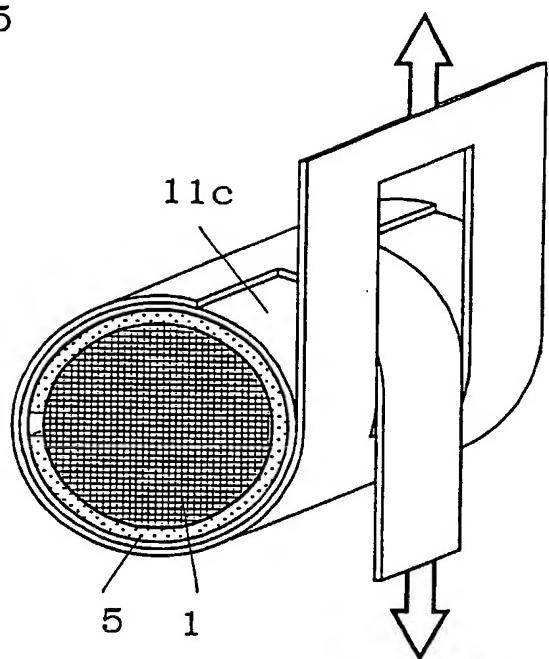
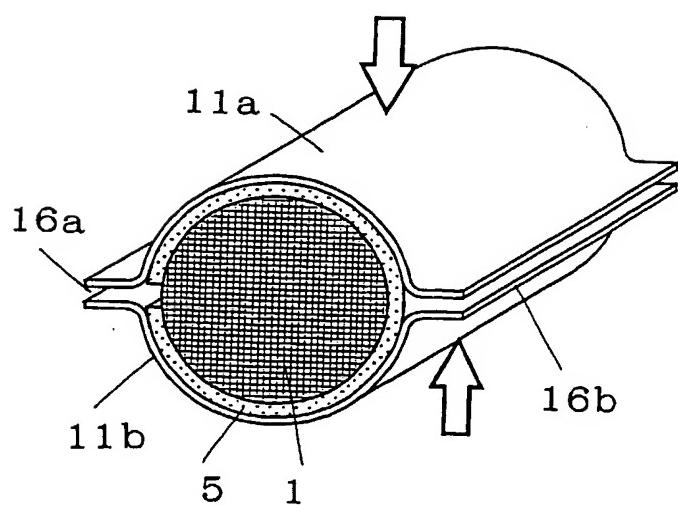
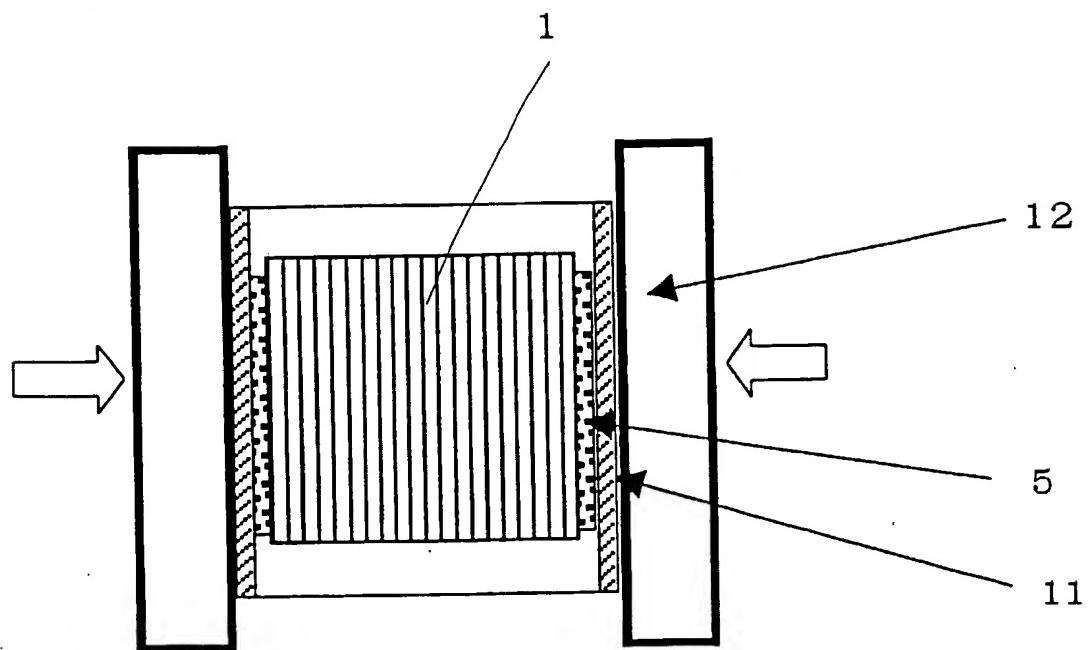


図6



4/7

図7



5/7

図8

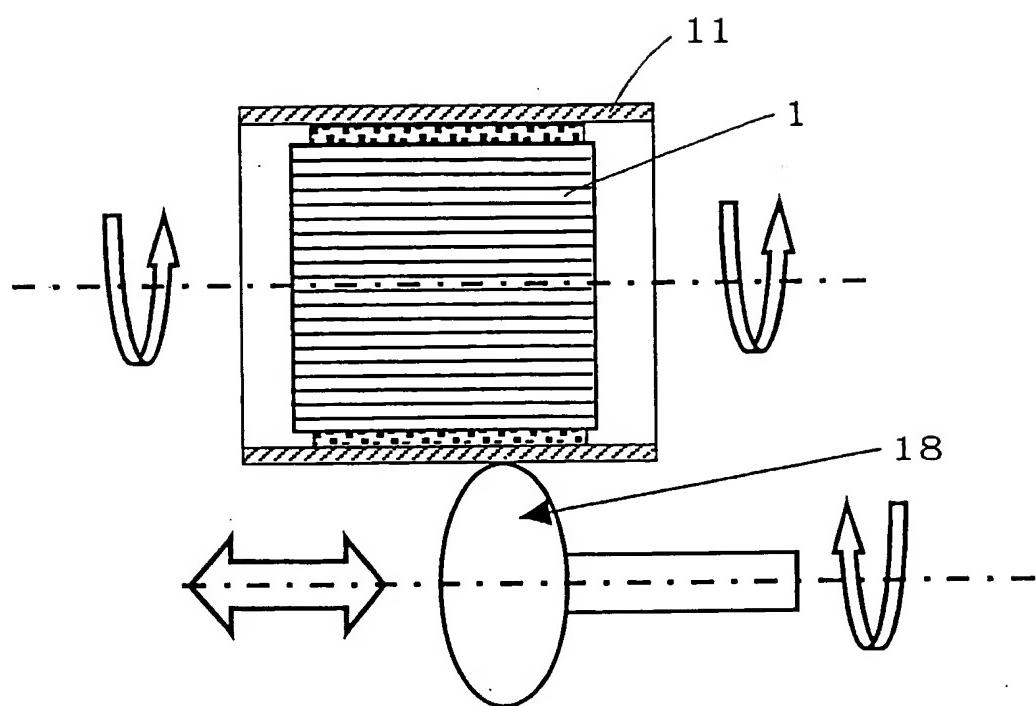
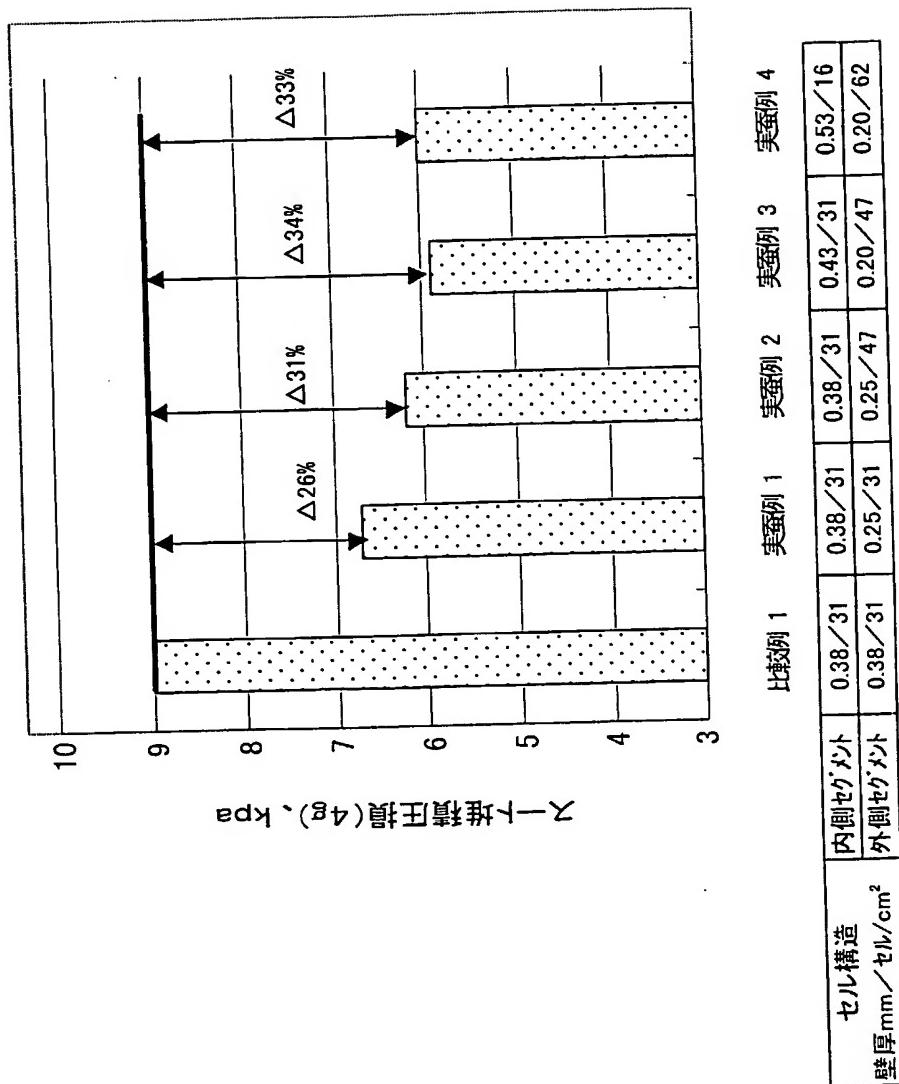
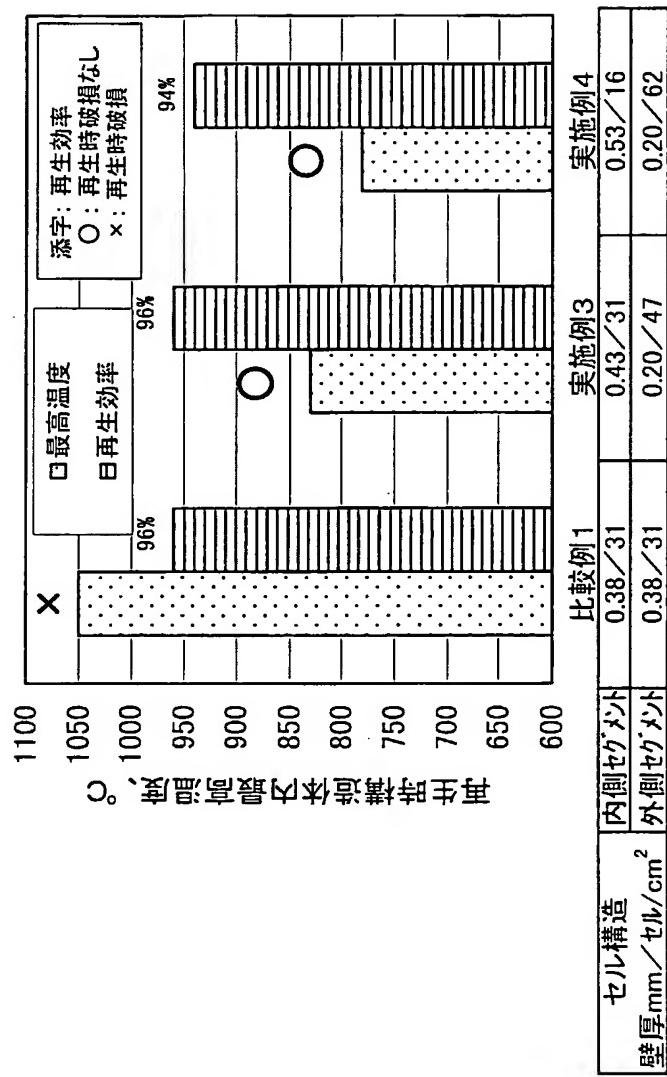


図9



7 / 7

10



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/03243

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ F01N3/28, B01D53/92, B32B3/12//B01D39/20, B01D46/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ F01N3/28, B01D53/92, B32B3/12, B01D39/20, B01D46/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2002
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2002	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2001

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2000-279728 A (Ibiden Co., Ltd.), 10 October, 2000 (10.10.00), Claims; examples; Fig. 2 (Family: none)	1
Y	JP 9-220480 A (Nippon Steel Corp.), 26 August, 1997 (26.08.97), Claims; page 1, column 1, lines 31 to 36, 40 to 46; example 2; Fig. 2 (Family: none)	1
Y	JP 9-155203 A (Nippon Steel Corp.), 17 June, 1997 (17.06.97), Claims; page 1, column 1, lines 26 to 32, 35 to 41; examples (Family: none)	1

 Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	"&" document member of the same patent family
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
02 July, 2002 (02.07.02)Date of mailing of the international search report
09 July, 2002 (09.07.02)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/03243

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	Microfilm of the specification and drawings annexed to the request of Japanese Utility Model Application No. 196526/1984 (Laid-open No. 113915/1986) (Suzuki Motor Co., Ltd.), 18 July, 1986 (18.07.86), Claims; examples; Fig. 2 (Family: none)	1

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/03243

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:
(See extra sheet)

1. As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.: 1

Remark on Protest The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
 No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

application No.

PCT/JP02/03243

Continuation of Box No.II of continuation of first sheet(1)

The matter common to Claims 1 through 16 is that in a honeycomb structure in which a plurality of honeycomb segments of honeycomb construction having a number of axially-through flow holes separated by partition walls are integrated, at least one of said honeycomb segments not constituting the outermost peripheral surface of the honeycomb structure is greater in average wall thickness and not greater in cell density than at least one of the honeycomb segments constituting said outermost peripheral surface.

However, the search results have made it clear that the technical feature, which is disclosed in JP 2000-279728 A (Ibiden Co., Ltd.) October 10, 2000, particularly, in Claims, embodiments, and Fig. 2 thereof, is not novel.

(In addition, said document has also made it clear that as for Claims 7, 8, 11, 12, there is no novel technical feature in common with Claims dependent thereon.)

As a result, said absorbent material is no better than the prior art, so that in the sense of the second sentence of PCT rule 13. 2, this common matter is not a special technical feature.

Therefore, there is no special technical feature common to all of Claims 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13, 14, 15, 16.

Since there is no other common matter which is thought to be a special technical matter in the sense of the second sentence of PCT Rule 13. 2, no technical relationship in the sense of PCT Rule 13 can be found among these differing inventions.

After all, it is clear that Claims 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13, 14, 15, 16 do not satisfy the requirement of unity of invention.

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JPO2/03243

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl' F01N 3/28, B01D53/92, B32B 3/12 // B01D39/20, B01D46/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl' F01N 3/28, B01D53/92, B32B 3/12, B01D39/20, B01D46/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996

日本国公開実用新案公報 1971-2002

日本国登録実用新案公報 1994-2002

日本国実用新案登録公報 1996-2001

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 2000-279728 A (化テン株式会社) 2000. 10. 10、特許請求の範囲、実施例、図2 (ファミリーなし)	1
Y	JP 9-220480 A (新日本製鐵株式会社) 1997. 08. 26、特許請求の範囲、第1頁第1欄第31-36、40-46行、実施例2、図2 (ファミリーなし)	1

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

02. 07. 02

国際調査報告の発送日

09.07.02

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

中村 泰三



4Q 9040

電話番号 03-3581-1101 内線 3468

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JPO2/03243

C(続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 9-155203 A (新日本製鐵株式会社) 1997. 06. 17、特許請求の範囲、第1頁第1欄第26-32、35-41行、実施例 (ファミリーなし)	1
Y	日本国実用新案登録出願59-196526号(日本国実用新案登録出願公開61-113915号)の願書に添付した明細書及び図面のマイクロフィルム (鈴木自動車工業株式会社) 1986. 07. 18、実用新案登録請求の範囲、実施例、第2図 (ファミリーなし)	1

第Ⅰ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第Ⅱ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

別紙参照

1. 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

請求項 1

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

別紙

請求項1乃至16に共通の事項は、隔壁により仕切られた軸方向に貫通する多数の流通孔を有するハニカム構造体からなる複数のハニカムセグメントが一体化されてなるハニカム構造体の最外周面を構成しない前記ハニカムセグメントの少なくとも1(つ)が、前記最外周面を構成するハニカムセグメントの少なくとも1つよりも平均壁厚が厚く、且つセル密度が小さいか又は等しいことである。

しかしながら、調査の結果、当該技術的特徴はJP 2000-279728 A (ヒデン株式会社) 2000. 10月. 10、特許請求の範囲、実施例、図2、に開示されているから、新規でないことが明らかになった。

(なお、当該文献により、請求項7、8、11、12についてもそれらの従属項との間に共通する新規な技術的特徴がないことが明らかとなった。)

結果として、該吸着材は先行技術の域を出ないから、PCT規則13.2の第2文の意味において、この共通の事項は、特別な技術的特徴ではない。

それゆえ、請求項1、2、3、4、5、6、7、8、9、10、11、12、13、14、15、16の全てに共通の特別な技術的特徴はない。

PCT規則13.2の第2文の意味において特別な技術的事項と考えられる他の共通の事項は存在しないので、それらの相違する発明の間にPCT規則13の意味における技術的な関連を見出すことはできない。

結局、請求項1、2、3、4、5、6、7、8、9、10、11、12、13、14、15、16は、発明の單一性の要件を満たしていないことが明らかである。